

BF4 日本における硝酸塩粒子の大気質モデル再現性向上のための 感度解析

Sensitivity Analysis to Improve Air Quality Model Performance for Particulate Nitrate in Japan

共生環境評価領域

08E20066 古川凜 (Rin FURUKAWA)

Abstract: Exposure to fine particulate matter (PM_{2.5}) causes adverse health effects. Source contribution analysis using air quality models plays an important role in exploring effective countermeasures to PM_{2.5} air pollution. However, the models have failed to accurately reproduce fine-fraction nitrate (fNO₃), one of the major PM_{2.5} components. Coarse particles, such as sea-salt particles (SSA) and windblown dust (WBD), affect the behavior of fNO₃ because they react with gaseous nitric acid (HNO₃), precursor of fNO₃, to form coarse-fraction nitrate (cNO₃). This study evaluates the impact of natural coarse particle emissions on fNO₃ concentrations using air quality simulations. The simulation overestimated fNO₃, cNO₃, total nitrate (tNO₃), and SSA concentrations, and revealed much larger impacts of SSA to the partitioning fraction of all nitrate components (NO₃) than those of WBD. Based on these results, additional simulation was conducted in the case of reduced SSA release and increased NO₃ deposition. The reduction of SSA brought the partitioning fraction of NO₃ closer to the observed value, and the increase in NO₃ deposition brought the NO₃ concentration closer to the observed value. These results indicate that mitigating the overestimations in both tNO₃ and SSA contributes to better model performance for fNO₃.

Keywords: PM_{2.5}, Nitrate, Partitioning fraction, Sea-salt particles, Air quality simulation

1. はじめに

大気汚染物質である微小粒子状物質 (PM_{2.5}) は呼吸器系や循環器系への健康影響をもたらす。PM_{2.5} の構成成分は一次粒子と二次粒子に分けられ、なかでも割合の高い二次粒子は大気中の多数の前駆物質による複雑な化学反応を経て生成される¹⁾。PM_{2.5} 濃度低減策の検討において、大気質モデルを用いた二次粒子の前駆物質を含めた発生源寄与解析は重要であるが、現状の大気質モデルは PM_{2.5} の主要成分のひとつである二次粒子の微小硝酸塩 (fNO₃) を十分には再現できていない²⁾。その前駆物質である硝酸ガス (HNO₃) は、海塩等の粗大粒子と反応して粗大硝酸塩 (cNO₃) となるため、粗大粒子は fNO₃ の動態にも影響する。そこで本研究では、大気質モデルにおいて自然起源粗大粒子が日本における硝酸塩の動態に及ぼす影響を評価し、それを基に fNO₃ 濃度の再現性向上の可能性について検討した。

2. 方法

本研究では気象モデルに WRF v4.3、大気質モデルに CMAQ v5.3.3 を用いた。計算期間は 2019 年の 1 年間とした。計算領域は水平解像度 45km のアジア域と 15km の日本域とした。排出量は、国外人為起源に HTAP v2.2 (2010 年基準, 中国のみ 2017 年に補正)、国内人為起源に環境省 PM_{2.5} 排出インベントリ (2015 年基準) を用いた。濃度再現性評価には、環境省による PM_{2.5} 成分自動測定機 (ACSA-14) による観測値、全環研によるフィルターパック (FP) 法による観測値を使用した。CMAQ の計算は、全ての排出を考慮した標準ケース (Base) に加え、海塩粒子 (SSA) の排出量を 0 にしたケース (SSA_off)、土壌性ダスト (WBD) の排出量を 0 にしたケース (WBD_off) で実施した。これらの比較により fNO₃ の動態に対する海塩・土壌性ダストの影響を評価した。そして、海塩粒子の放出量を削減したケース、さらに全ての硝酸成分 (NO₃) の沈着を増加させたケースで再計算を行い、再現性の改善を検討した。

3. 結果

fNO₃の動態に影響を与える前駆物質や粗大粒子等の化学成分である、PM_{2.5}成分自動測定地点の年平均cNO₃、fNO₃、HNO₃濃度の平均値とFP法測定地点の年平均Na⁺、Ca²⁺、総硝酸(tNO₃)濃度の平均値、SSA、WBDの寄与を図1に示す。年平均cNO₃濃度は2.2μg/m³でSSA寄与はその82%を占め、WBD寄与は13%となった。また、年平均fNO₃濃度は1.3μg/m³で、SSA寄与は-58%、WBD寄与は-8%、年平均HNO₃濃度は1.5μg/m³でSSA寄与は-76%、WBD寄与は-6%となった。以上から、NO₃濃度に対する粗大粒子の影響は、SSAがWBDよりも大きい。SSAの主成分であるNa⁺濃度は119%、tNO₃濃度は73%過大評価となった。これらの過大評価がcNO₃、fNO₃濃度の過大評価の要因と考えられた。そこで、(1)Na⁺濃度の119%過大評価より、SSAの放出を46%に抑えたケース(EmisSEAx0.46)、(2)さらにtNO₃濃度の73%過大評価より、NO₃の沈着速度を73%増加させたケース(EmisSEAx0.46DepNO3x1.73)の2つのケースで再度計算した。PM_{2.5}成分自動測定地点平均のNO₃分配を図2に示す。Baseケースは観測値と比べてcNO₃の濃度が高くなっている。また、Base・SSA_off・EmisSEAx0.46ケースの比較より、SSAの削減によってtNO₃濃度はほぼ変化しなかったが、SSAの削減量に伴って、SSAと反応して生成されるcNO₃が減少し、NO₃の分配は大きく変化している。これより、海塩粒子の主成分であるNa⁺濃度の過大評価を改善することでNO₃の分配を観測値に近づけられると考えられる。また、NO₃の沈着を増加させることでtNO₃濃度は減少するが、NO₃の分配には大きな変化はなかった。この結果より、Na⁺、tNO₃濃度の過大評価を改善することでfNO₃濃度の再現性向上につながると考えられる。

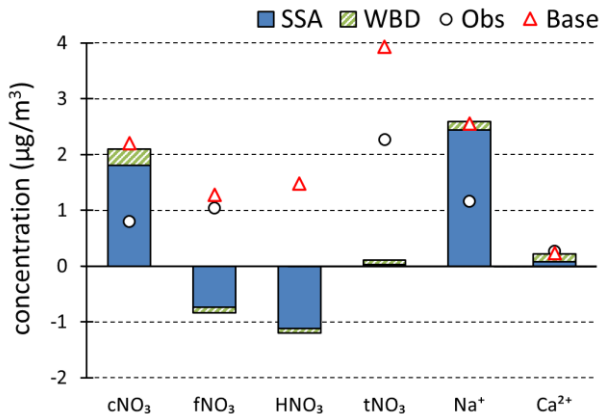


図1 NO₃の生成に関わる化学成分の年平均濃度

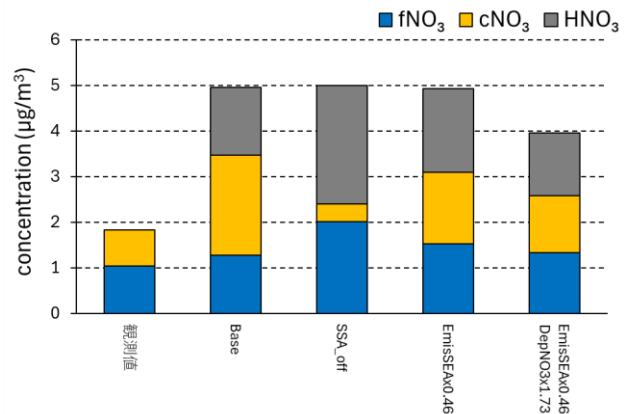


図2 NO₃分配の比較

4. 結論

本研究では、大気質シミュレーションによって、日本におけるfNO₃の動態に対する自然起源粗大粒子の影響を評価し、WBDよりもSSAの影響が大きいことを示した。また、fNO₃濃度は過大評価されていた。この過大評価を改善するため、SSAの放出削減・NO₃の沈着増加させたケースで再度計算し、NO₃濃度を算出した。この結果、SSAの削減により、硝酸の組成比が観測値に近づき、NO₃の沈着増加により、硝酸の組成比を変化させずにNO₃濃度が観測値に近づいた。以上より、Na⁺、tNO₃濃度の過大評価を改善することがfNO₃濃度の再現性向上につながると考えられる。

参考文献

- 1) 環境省: 平成25年度微小粒子状物質(PM_{2.5})二次生成粒子の挙動解明に関する文献調査
- 2) Jo, H., Lee, H., Jo, Y., Heo, G., Lee, M., Kim, J., Park, M., Lee, T., Kim, S., Lee, Y., & Kim, C., :A case study of heavy PM_{2.5} secondary formation by N₂O₅ nocturnal chemistry in Seoul, Korea in January 2018 :Model performance and error analysis, *Atmospheric Research.*, 266, 105951, 2022.